ФИЗИКА МЕТАЛЛОВ И МЕТАЛЛОВЕДЕНИЕ, 2021, том 122, № 4, с. 377–383

ЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ И МАГНИТНЫЕ СВОЙСТВА

УДК 539.216.2:537.635;537.876.4

ПРОХОЖДЕНИЕ МИКРОВОЛН ЧЕРЕЗ КОМПОЗИТНЫЙ МАТЕРИАЛ С ЧАСТИЦАМИ ИЗ СПЛАВА Fe–Si–Nb–Cu–B

© 2021 г. А. Б. Ринкевич[a], *, Ю. И. Рябков[b], **, Д. В. Перов[a], Я. А. Пахомов[a], Е. А. Кузнецов[a]

[a]*Институт физики металлов им. М.Н. Михеева УрО РАН, ул. С. Ковалевской, 18, Екатеринбург, 620108 Россия*

[b]*Институт химии УрО РАН, Сыктывкар, 167982 Россия*

**e-mail: rin@imp.uran.ru*

***e-mail: ryabkov-yi@chemi.komisc.ru*

Поступила в редакцию 21.07.2020 г.
После доработки 29.09.2020 г.
Принята к публикации 18.12.2020 г.

Исследовано прохождение электромагнитных волн через образцы композитного материала, содержащего частицы сплава Fe–Si–Nb–Cu–B размером до 50 мкм. Измерены зависимости коэффициентов прохождения и отражения от магнитного поля на частотах от 12 до 38 ГГц. Определена зависимость эффективной магнитной проницаемости от магнитного поля и рассчитан комплексный коэффициент рефракции. Исследована частотная зависимость максимальных значений действительной и мнимой частей этого коэффициента.

Ключевые слова: композиты, частицы сплава Fe–Si–Nb–Cu–B, электромагнитные волны, ферромагнитный резонанс

DOI: 10.31857/S0015323021040082

ВВЕДЕНИЕ

Благодаря возможности подбора требуемых электрических свойств, устойчивости к окислению, легкости приготовления композитные материалы с металлическим наполнителем нашли применение как материалы для электромагнитного экранирования и электростатической защиты [1]. Возможно изменение высокочастотных свойств композита с магнитными частицами действием внешнего магнитного поля [2]. Значительный интерес вызывает проблема изучения микроволновых магнитных потерь в композитах [3]. Исследование микроволновых электрических свойств композитов проведено в [4, 5]. Влияние магнитного поля на частотную дисперсию магнитной проницаемости композитов изучено в [5, 6]. Разумеется, форма металлических и концентрация магнитных частиц оказывает существенное влияние на высокочастотные электромагнитные свойства. Повышенная способность к электромагнитному экранированию обнаружена в композитах с частицами в форме чешуек [7, 8]. В интервале частот от 2 до 18 ГГц хорошие поглощающие свойства получены у композитов с частицами из сплава $Fe_{16}Ni_{82}Mo_2$ в эпоксидной матрице [9].

Исследованные в настоящей работе композитные образцы были приготовлены из частиц сплава типа “файнмет” Fe–Si–Nb–Cu–B в эпоксиаминной матрице. Частицы имеют размер не более 50 мкм. Матрица выбрана из-за умеренной диэлектрической проницаемости, высокой прочности, коррозионной устойчивости. Метод прохождения микроволн выбран в качестве основного экспериментального метода [11]. Как правило, микроволновые свойства магнитных композитов исследуют в интервале частот до 20 ГГц. Расширение частотного интервала даст возможность наблюдать и исследовать явление магнитного антирезонанса в композите [10].

В настоящей работе измерена частотная зависимость коэффициента прохождения через пластину из композитного материала в интервале от 12 до 38 ГГц, а также зависимость коэффициента прохождения от магнитного поля и детально изучены резонансные явления.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ МЕТОДЫ И ОБРАЗЦЫ

В исследуемых композитных образцах были использованы частицы сплава типа “файнмет” Fe–Si–Nb–Cu–B примерного состава 77% Fe, 8.5% Si, 8.4% Nb, 1.1% Cu, 1.2% B, 0.2% Cr. Частицы имеют форму чешуек с максимальным размером до 50 мкм. Композит получен в эпоксиаминной матрице при наполнении 15 об. % металлических чешуек. Изображение структуры композита получено с помощью электронного микроскопа

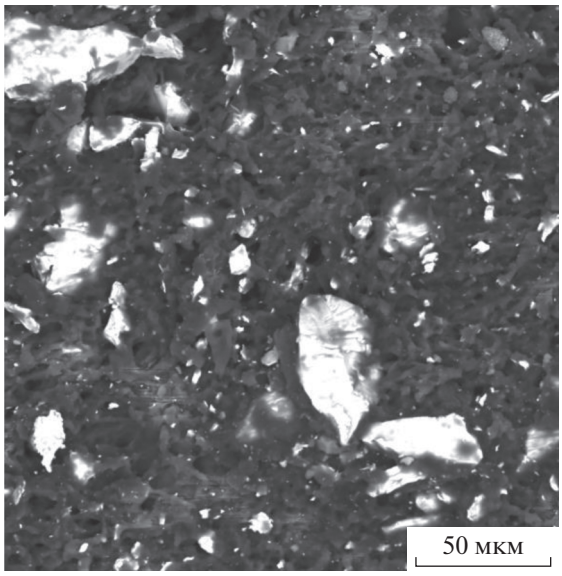

Рис. 1. Электронно-микроскопическое изображение структуры композита.

Vega3 Tescan при ускоряющем напряжении 20 кВ (рис. 1). На фрагменте поверхности композита видны светлые металлические частицы, распределенные в эпоксиаминной матрице. Визуально не наблюдается прямых контактов между металлическими частицами. Это подтверждено также высоким (более 2 МОм см) сопротивлением композитного материала.

Микроволновые измерения выполнены в интервале частот от 12 до 38 ГГц методом прохождения волн через образец исследуемого материала в форме пластины [9]. Образец помещается в поперечное сечение прямоугольного волновода таким образом, что полностью его перекрывает (рис. 2). Волновод работает на моде TE_{10}, а его размеры определяются диапазоном рабочих частот: 16 × 8 мм на интервал 12–17 ГГц; 11.5 × 5 мм на интервал 17–26 ГГц; 7.2 × 3.4 мм на интервал 27–38 ГГц. Толщина образца составляет 2 мм. С помощью измерителя КСВ и отражения измерены модули коэффициента прохождения D и отражения R и их зависимости от частоты и напряженности внешнего магнитного поля. Относительное изменение модуля коэффициента прохождения определено как $d_m = (|D(H)| - |D(0)|)/|D(0)|$, где $|D(0)|$ – модуль коэффициента прохождения в магнитном поле H. Аналогично, относительное изменение модуля коэффициента отражения определено как $r_m = (|R(H)| - |R(0)|)/|R(0)|$, где $|R(0)|$ – модуль коэффициента отражения в магнитном поле H. Постоянное магнитное поле **H** лежит в плоскости пластины и направлено перпендикулярно сверхвысокочастотному магнитному полю $\mathbf{H}_\sim$, $\mathbf{H} \perp \mathbf{H}_\sim$. Все микроволновые измерения выполнены при комнатной температуре. Измерения частотной зависимости коэффициента прохождения использованы для определения комплексной диэлектрической проницаемости $\varepsilon_{ef} = \varepsilon' - i\varepsilon''$ по методике, описанной в [5].

РЕЗУЛЬТАТЫ МИКРОВОЛНОВЫХ ИЗМЕРЕНИЙ

Результаты измерения диэлектрической проницаемости представлен на рис. 3. В частотной зависимости действительной части ε' присутствует максимум около частоты f = 21 ГГц. При более высоких частотах ε' уменьшается, а затем выходит на приблизительно постоянное значение около 5.5. В зависимости мнимой части ε'' присутствует разрыв около 17 ГГц. Наличие разрыва связано с тем,

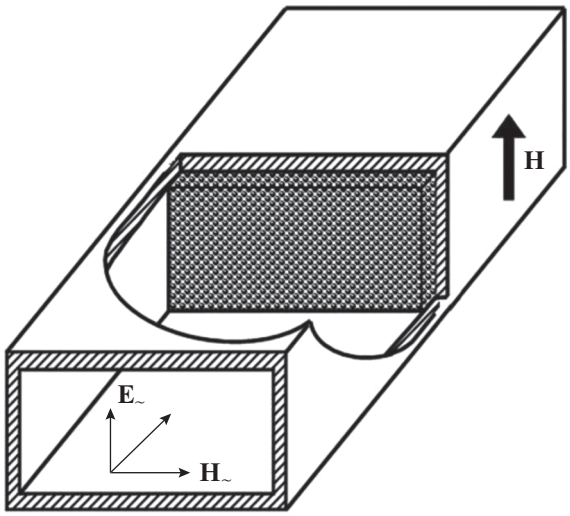

Рис. 2. Схема расположения образца в волноводе.

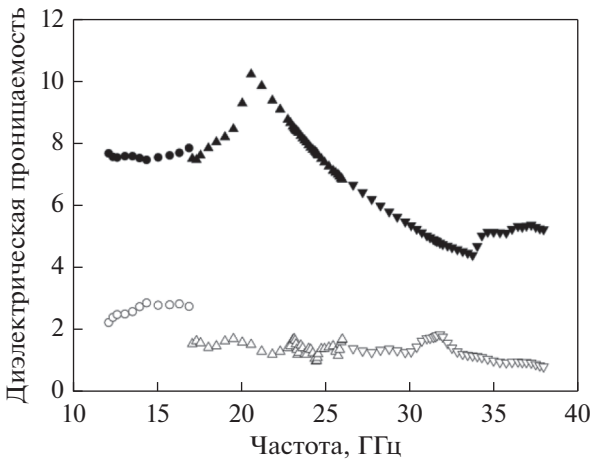

Рис. 3. Частотные зависимости действительной (заполненные символы) и мнимой (открытые символы) частей диэлектрической проницаемости.

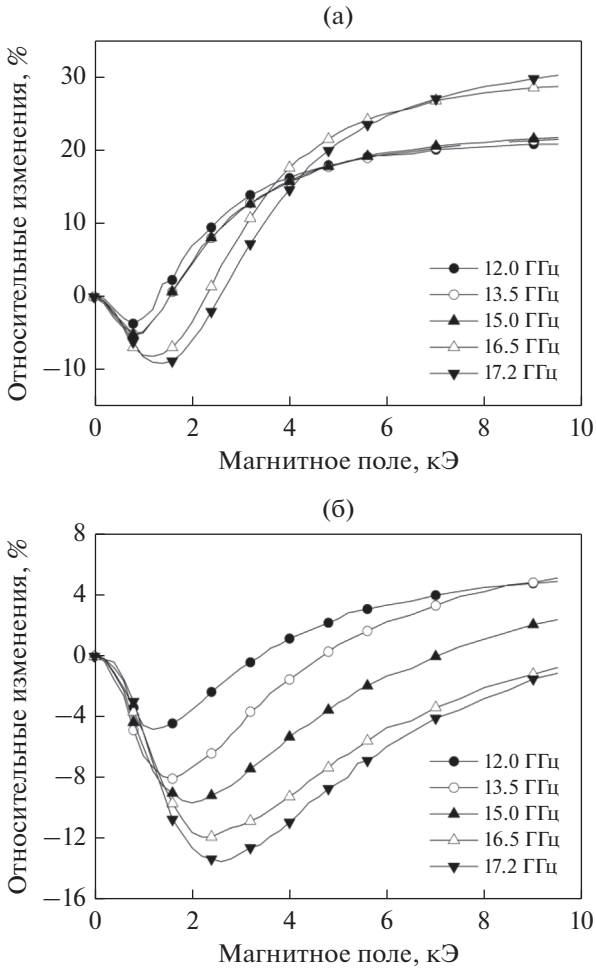

Рис. 4. Зависимость коэффициента прохождения (а) и отражения (б) микроволн от магнитного поля для композитного образца. Частоты от 12 до 17.2 ГГц.

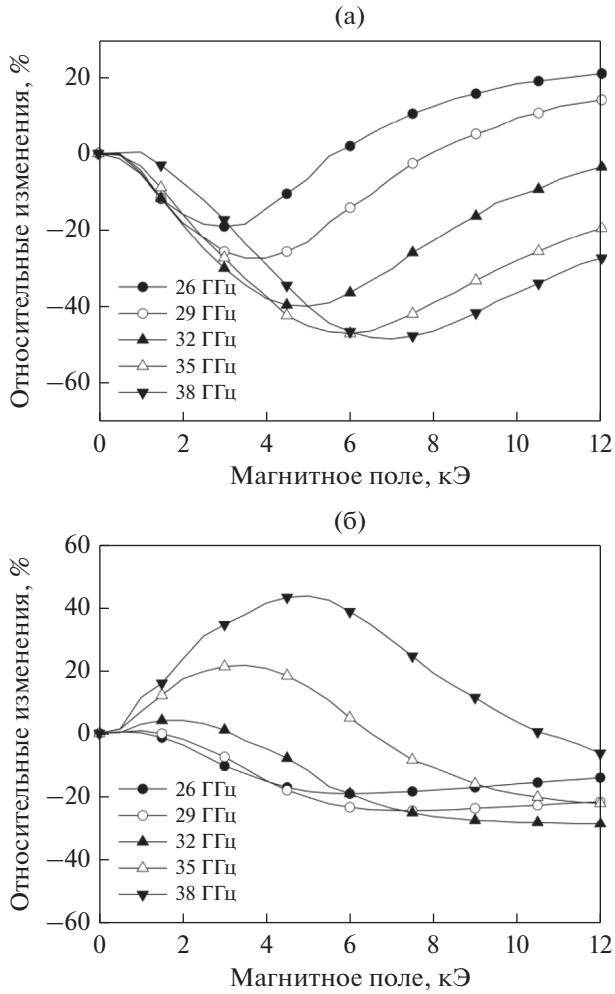

Рис. 5. Зависимость коэффициентов прохождения (а) и отражения (б) микроволн от магнитного поля для композитного образца. Частоты от 26 до 38 ГГц.

что измерения выполнены в волноводах разного сечения с разным волновым сопротивлением. Присутствие максимума ε', вероятно, связано с релаксационными свойствами композита, которые определяются концентрацией и размерами металлических частиц. Выяснение причины возникновения максимума требует дополнительного исследования. Для расчета показателя преломления потребуются численные значения комплексной диэлектрической проницаемости. Данные рис. 3 дают основания считать, что без внешнего магнитного поля на рассмотренных частотах сантиметрового и миллиметрового диапазонов композит можно считать несовершенным диэлектриком с потерями.

Перейдем к рассмотрению прохождения и отражения электромагнитных волн в магнитном поле. Полевые зависимости коэффициента прохождения даны на рис. 4а для диапазона частот 12–17.2 ГГц и рис. 5а для диапазона 26–38 ГГц. Результаты измерений коэффициента отражения приведены на рис. 4б и 5б. Наиболее заметная особенность на рис. 4а, 4б – это наличие минимума коэффициентов прохождения и отражения. Поле минимума сдвигается к более сильным полям при возрастании частоты волны. Этот минимум вызван поглощением волн в условиях ферромагнитного резонанса (ФМР). Поле резонанса в области магнитного насыщения определяется по формуле Киттеля [11]:

$$\frac{\omega}{\gamma} = \prod_{j=\{x,y\}} \sqrt{H + (N_j - N_z)M_s}, \qquad (1)$$

где $\omega = 2\pi f$ – круговая частота, γ – магнитомеханическое отношение, M_s – намагниченность насыщения, N_i – компоненты диагонализированного тензора размагничивающих факторов, $i = \{x, y, z\}$ – декартовы координаты. Предполагается, что поле намагничивания H направлено вдоль оси z. Компоненты N_i зависят от формы и ориентации магнитных металлических частиц. Различие в ком-

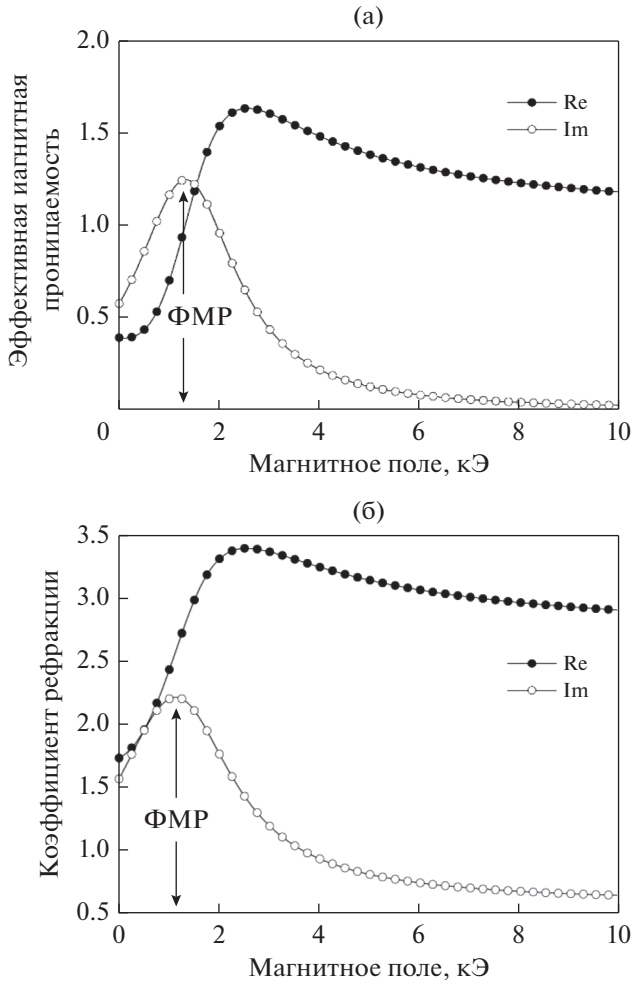

Рис. 6. Зависимость действительной и мнимой частей микроволновой магнитной проницаемости (а) и микроволнового коэффициента рефракции (б) от магнитного поля. Частота $f = 12$ ГГц.

понентах N_i для различным образом ориентированных чешуек приводит к широкой линии ФМР.

В интервале частот 17–26 ГГц характер полевых зависимостей коэффициентов D и R остается таким же, как показано на рис. 4, только резонанс достигается в более сильных полях. На еще более высоких частотах 26–38 ГГц также наблюдается минимум коэффициентов, вызванный ФМР, как это показано на рис. 5. Отметим, что изменения коэффициента прохождения в минимуме достигают 50%, что представляет интерес для практических приложений. Для коэффициента отражения на частотах выше 32 ГГц кроме минимума из-за ФМР, присутствует еще максимум (рис. 5б). Этот максимум достигается в полях, меньших поля ФМР и существует только на частотах выше некоторой. Все указанные признаки, согласно [10, 11], соответствуют ферромагнитному антирезонансу (ФМАР).

В поле антирезонанса H_2 действительная часть эффективной магнитной проницаемости μ_{ef} обращается в нуль, $\mu'_{ef} = 0$. Согласно [11], зависимость поля H_2 от частоты задается соотношением

$$H_2 = \sqrt{\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 + (2\pi M_s)^2} - 2\pi M_s. \quad (2)$$

Для частоты $f = 35$ ГГц оценка поля H_2 по (2) для намагниченности насыщения $M_s = 900$ Гс дает $H_2 \approx 8.1$ кЭ, что значительно превышает поле максимума коэффициента отражения на этой частоте (рис. 5б). Это различие неудивительно, т.к. формула (2) записана для пластины из однородного ферромагнитного материала, а в нашем случае рассматривается сильно неоднородный композит со случайным образом ориентированными ферромагнитными чешуйками.

МИКРОВОЛНОВОЙ КОЭФФИЦИЕНТ РЕФРАКЦИИ

Зная ширину линии ФМР из рис. 4а и 5а, можно рассчитать компоненты тензора динамической магнитной проницаемости по методу, описанному в [11]. Из диагональной μ и недиагональной μ_a компонент тензора проницаемости можно получить эффективную магнитную проницаемость μ_{ef}:

$$\mu_{ef} = \mu - \frac{\mu_a^2}{\mu}. \quad (3)$$

Результат расчета эффективной магнитной проницаемости для частоты $f = 12$ ГГц показан на рис. 6а. Максимум мнимой части соответствует резонансу ФМР. Ниже поля ФМР действительная часть проницаемости отрицательна и в нуль не обращается. Это означает, что на этой частоте антирезонанс ФМАР не осуществляется, в соответствии с экспериментальными данными рис. 4.

Зная магнитную проницаемость и используя данные об эффективной диэлектрической проницаемости, можно рассчитать комплексный коэффициент рефракции:

$$n = n' - in'' = \sqrt{\varepsilon_{ef}\mu_{ef}}, \quad (4)$$

где n' – показатель преломления, n'' – коэффициент затухания. Результат расчета действительной и мнимой частей коэффициента рефракции приведен на рис. 6б. Поле ФМР приблизительно соответствует максимуму мнимой части коэффициента рефракции.

На рис. 7а показаны частотные зависимости поля максимума на зависимостях нескольких величин от магнитного поля. Открытыми символами показана зависимость, определенная из экспериментальных данных. За поле резонанса ФМР принято поле максимума диссипации микро-

волн. Диссипация Δ рассчитывается из коэффициентов $D(H)$ и $R(H)$:

$$\Delta(H) = 1 - |D(H)|^2 - |R(H)|^2. \quad (5)$$

Параметр Δ выражает долю мощности, поглощенную и рассеянную в образце.

Расчет выполняется следующим образом. Коэффициенты прохождения $D(H)$ и отражения $R(H)$ выражаются формулами [9]:

$$D = \frac{2}{2\mathrm{ch}\beta_2 d + \left(\xi + \xi^{-1}\right)\mathrm{sh}\beta_2 d}, \quad (6)$$

$$R = \frac{\left(\xi - \xi^{-1}\right)\mathrm{sh}\beta_2 d}{2\mathrm{ch}\beta_2 d + \left(\xi + \xi^{-1}\right)\mathrm{sh}\beta_2 d}. \quad (7)$$

В этих формулах d – толщина образца, a – размер большей стенки волновода прямоугольного сечения, $\beta_2 = \beta_2' - i\beta_2''$ – постоянная распространения волны TE_{10} в образце, $\xi = Z_2/Z_1$ – отношение эквивалентных сопротивлений заполненного образцом Z_2 и незаполненного Z_1 участков волновода. Эквивалентные сопротивления рассчитывают по следующим формулам:

$$Z_1 = \frac{b}{a}\frac{60\pi^2}{\sqrt{1 - \left(\frac{c}{2af}\right)^2}}; \quad Z_2 = \frac{b}{a}\frac{60\pi^2\mu_{ef}}{\sqrt{\varepsilon_{ef}\mu_{ef} - \left(\frac{c}{2af}\right)^2}}. \quad (8)$$

Эффективная магнитная проницаемость μ_{ef} рассчитывается через компоненты тензора магнитной проницаемости по формуле (3). Постоянную распространения β_2 можно рассчитать по формуле (9)

$$\beta_2 = \sqrt{\left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \varepsilon_{ef}\mu_{ef} - \left(\frac{\pi}{a}\right)^2}. \quad (9)$$

На участке волновода без образца в формулах (8) и (9) нужно положить $\varepsilon_{ef} = 1$, $\mu_{ef} = 1$. После расчета $D(H)$ и $R(H)$ по формулам (6) и (7) можно определить положение максимумов диссипации Δ, согласно формуле (5) (темные точки на рис. 7а). Расчетная и экспериментальная зависимости диссипации близки друг к другу.

Далее по формуле (4) были рассчитаны полевые зависимости коэффициента рефракции n. Положение максимумов полевой зависимости n' и n'' также показано на рис. 7а. Как диссипация Δ, так и мнимая часть коэффициента рефракции n'' связаны с поглощением энергии микроволн, поэтому можно ожидать, что максимумы этих величин на частотной зависимости (рис. 7а) будут близки друг к другу. Вклад в диссипацию Δ дают несколько источников потерь, среди которых затухание в диэлектрической подсистеме материала, затухание в магнитной подсистеме, рассеяние в неоднородном композите. Последние два источника потерь зависят от магнитного поля. В рассматриваемой области частот длина волны в композите $\lambda = c/\left(f\sqrt{\varepsilon}\right) \sim 3$ мм, что значительно больше, чем максимальный размер неоднородностей наноком-

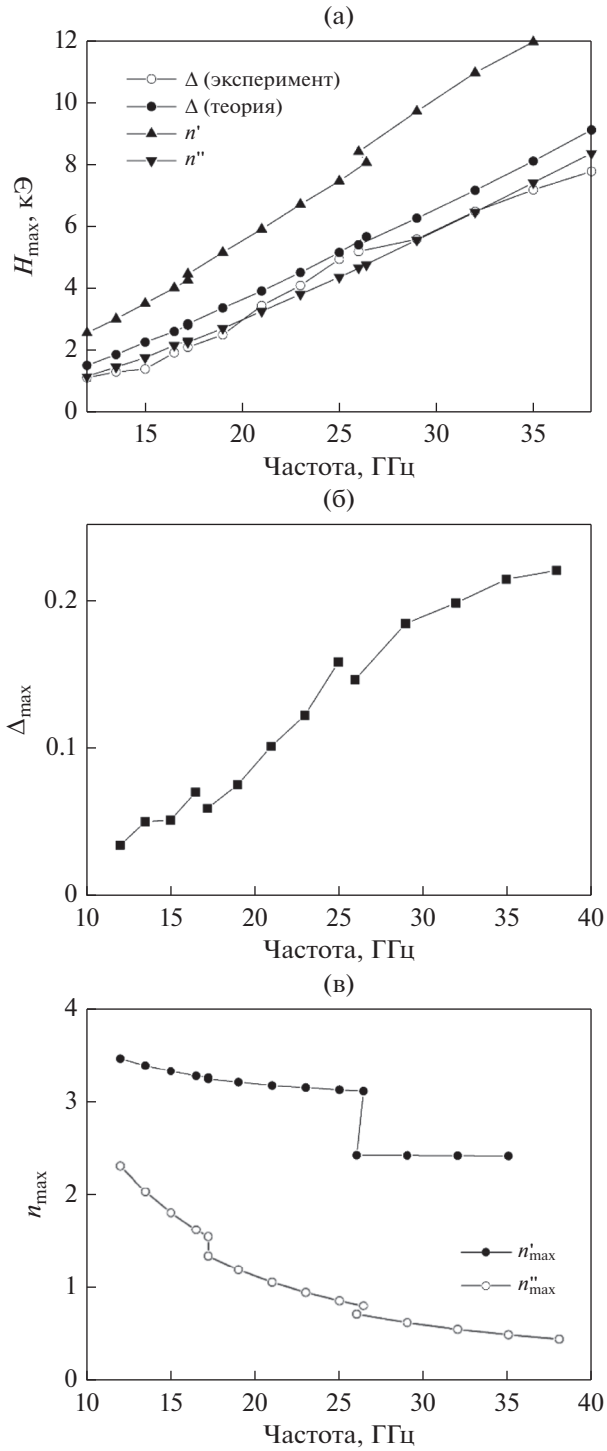

Рис. 7. Частотная зависимость поля резонанса и полей, в которых достигаются максимальные значения действительной и мнимой частей коэффициента рефракции (а), амплитуды резонанса (б) и частотная зависимость максимальных значений действительной и мнимой частей коэффициента рефракции (в).

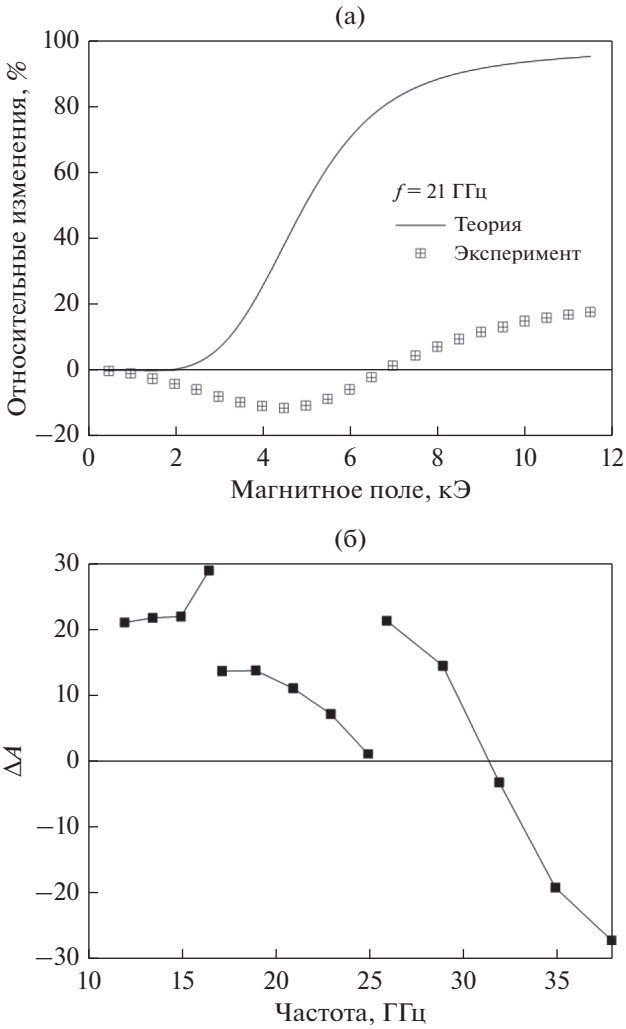

Рис. 8. Сопоставление экспериментальной и рассчитанной зависимостей коэффициента прохождения от магнитного поля на частоте 21 ГГц (а); частотная зависимость разницы между значениями коэффициента прохождения в максимальном и нулевом магнитных полях (б).

позита 50 мкм. Поэтому рассеяние осуществляется в рэлеевской области. Вполне вероятно, что различие между зависимостями максимума диссипации и максимума n'' вызвано рассеянием микроволн. Максимум действительной части n' должен иметь место в более высоких полях, что и показано на рис. 7а.

Частотная зависимость амплитуды максимума резонансной линии Δ показана на рис. 7б. С увеличением частоты магнитуда, как и обычно, увеличивается. Разрывы на этой зависимости около 17 и 26 ГГц связаны с тем, что коэффициенты прохождения и отражения, согласно (6) и (7), зависят от эквивалентного сопротивления волновода. На этих частотах происходит замена одного волновода на волновод с другим сечением, а потому и с другим волновым сопротивлением, что и вызывает разрывы.

Частотные зависимости рассчитанных максимальных значений действительной n' и мнимой n'' частей комплексного коэффициента рефракции показаны на рис. 7в. Разрывы на этих зависимостях вызваны той же причиной. Из рис. 7в видно, что вблизи условий ФМР в нижней части рассматриваемого частотного диапазона максимальные значения мнимой и действительной частей комплексного показателя рефракции имеют один порядок величины. В нулевом внешнем магнитном поле n' и n'' имеют типичные для несовершенного диэлектрика значения. Например, на частоте $f = 12$ ГГц при $H = 0$ и $M = 0$ имеем $n' = 2.72$, $n'' = 0.62$. Однако на рис. 6б видно, что в магнитном поле, меньшем поля ФМР, действительная и мнимая части коэффициента рефракции одного порядка, т.е. $n'' \approx n'$.

Рассмотрим изменение амплитуды волны ΔA, прошедшей через образец, в сильном магнитном поле. В наших экспериментах это поле напряженностью 12 кЭ. Из рис. 4, 5 видно, что на некоторых частотах амплитуда прошедшей волны в поле 12 кЭ больше, чем в нулевом поле.

Причина этого изменения состоит в том, что в полях, больших поля ФМР, как действительная, так и мнимая части эффективной магнитной проницаемости уменьшаются. Расчет, выполненный по формуле (6) для частоты $f = 21$ ГГц, подтвердил возможность такого объяснения. Сопоставление экспериментальной и рассчитанной полевых зависимостей показано на рис. 8а. Хотя количественного соответствия не достигнуто, расчет подтвердил тенденцию увеличения амплитуды в сильном магнитном поле. На рис. 8б показана зависимость изменения амплитуды прошедшей волны в поле 12 кЭ как функция частоты. Разрывы и смена характера зависимости вблизи частот 17 и 26 ГГц показывают важность изменения волнового сопротивления при смене сечения волновода. Так что величина изменений в сильном поле обусловлена не только изменением материальных параметров образца, но и методикой эксперимента. Отрицательные значения ΔA на частотах 32 ГГц и более (рис. 8б) связаны с поглощением волны вблизи условия ФМР.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Исследованы микроволновые свойства композитного материала, содержащего чешуйки сплава Fe–Si–Nb–Cu–B в эпоксиаминной матрице. В интервале частот от 12 до 38 ГГц измерены коэффициенты прохождения и отражения и их зависимости от магнитного поля. Определена эффективная диэлектрическая проницаемость композита. В полевых зависимостях коэффициентов

прохождения и отражения присутствует минимум, вызванный ферромагнитным резонансом. На полевых зависимостях коэффициента отражения, измеренных на частотах свыше 32 ГГц, присутствует максимум, вызванный магнитным антирезонансом.

Рассчитан комплексный коэффициент рефракции и построена его зависимость от магнитного поля. Данный композитный материал с чешуйками сплава Fe–Si–Nb–Cu–B на постоянном токе проявляет свойства изолятора, так как концентрация чешуек ниже порога перколяции, и прямой контакт чешуек не осуществляется. На микроволновых частотах без внешнего магнитного поля композит является несовершенным диэлектриком с потерями. В магнитном поле ниже поля ФМР действительная и мнимая части комплексного коэффициента рефракции имеют значения одного порядка. Например, на частоте $f = 12$ ГГц в поле около 0.5 кЭ $n' \approx n''$.

Работа выполнена в рамках госзадания Минобрнауки РФ (тема “Функция” № АААА-А19-119012990095-0). Расчеты коэффициента рефракции выполнены при поддержке гранта РФФИ № 20-02-00135.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Kumar V., Kalia S., Swart H.C. (Eds.)* Conducting polymer hybrids. Cham: Springer International Publishing AG, 2017. 336 p.
2. *Lagarkov A.N., Rozanov K.N.* High-frequency behavior of magnetic composites // JMMM. 2009. V. 321. № 14. P. 2082–2092.
3. *Anzulevich A.P., Butko L.N., Bychkov I.V., Buchelnikov V.D., Kalganov D.A., Pavlov D.A., Fediy A.A., Kharitonova O.G., Moiseev S.G.* Dynamic magnetic losses in powders consisting of metallized dielectric particles at microwaves // JMMM. 2017. V. 444. P. 307–312.
4. *Розанов К.Н., Петров Д.А., Елсуков Е.П, Протасов А.В., Юровских А.С., Язовских К.А., Ломаева С.Ф.* Влияние нано-кристаллического состояния и электросопротивления порошков Fe и $Fe_{75}Si_{25}$, полученных методом высокоэнергетического размола, на частотные зависимости СВЧ материальных параметров // ФММ. 2016. Т. 117. № 6. С. 562–570.
5. *Rinkevich A.B., Perov D.V., Vaskovsky V.O., Gorkovenko A.N., Kuznetsov E.A.* Millimeter wave resistance of metal-dielectric $Co_x(SiO_2)_{1-x}$ and $Co_x(Al_2O_3)_{1-x}$ films // IEEE Trans. Nanotechnol. 2017. V. 16. № 6. P. 1067–1072.
6. *Shiryaev A.O., Rozanov K.N., Starostenko S.N., Bobrovskii S.Y., Osipov A.V., Petrov D.A.* The bias effect on the frequency dispersion of microwave permeability of composites filled with metal films or flakes // JMMM. 2019. V. 470. P. 139–142.
7. *Lan M., Cai J., Zhang D., Yuan L., Xu Y.* Electromagnetic shielding effectiveness and mechanical property of polymer–matrix composites containing metallized conductive porous flake-shaped diatomite // Composites: Part B. 2014. V. 67. P. 132–137.
8. *Yang R.B., Liang W.F.* Microwave absorbing characteristics of flake-shaped FeNiMo/epoxy composites // J. Appl. Phys. 2013. V. 113. 17A315.
9. *Устинов В.В., Ринкевич А.Б., Перов Д.В., Бурханов А.М., Самойлович М.И., Клещева С.М., Кузнецов Е.А.* Гигантский антирезонанс в отражении электромагнитных волн от 3D-структуры с наночастицами ферритов-шпинелей // ЖТФ. 2013. Т. 83. № 4. С. 104–112.
10. *Ustinov V.V., Rinkevich A.B., Perov D.V., Samoilovich M.I., Klescheva S.M.* Anomalous magnetic antiresonance and resonance in ferrite nanoparticles embedded in opal matrix // JMMM. 2012. V. 324. № 1. P. 78–82.
11. *Гуревич А.Г.* Магнитный резонанс в ферритах и антиферромагнетиках. М.: Наука, 1973. 591 с.